# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

08-250130

(43)Date of publication of application: 27.09.1996

(51)Int.CI.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number: 07-056146

(71)Applicant: TOSHIBA CORP

'(22)Date of filing:

15.03.1995

SHIMOTORI SOICHIRO (72)Inventor:

**MUKU YOSHIHARU** 

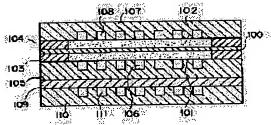
**MUNEUCHI ATSUO** 

**MURATA KENJI** 

## (54) SOLID POLYMER TYPE FUEL CELL

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a solid polymer type fuel cell, wherein assembly is facilitated and performance is sharply improved, by forming a fuel electrode side collector out of a hydrophilic conductive porous body, and a humidifying water permeating body out of a water repellent porous body respectively. CONSTITUTION: Fuel and oxidant electrodes 101 and 102 are arranged on both the surfaces of a polymer electlyte membrane 100, and a fuel electrode side collector 105 having a fuel gas guide groove 106 and an oxidant electrode side collector 107 having an oxidant gas guide groove 108 are provided while contacting with the electrodes 101 and 102 to form a unit cell, and plurals of its are layered. A cooling plate 110 is inserted into the lower surface of the collector 105 via a humidifying water permeating body 109 composed of porous body at every single cell, to supply cooling water to the membrane 100 via the collector 105 and the electrode 101. At this time, the collector 105 is formed out of a hydrophilic carbon porous plate, having a porosity of about 70% and a mean hole diameter of about 40μm, and is provided with the groove 106; and the body 109 is formed out of a carbon porous thin plate, having a porosity of about 40% and a mean hole diameter of about 5µm, and water repellent treatment is applied.



#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

19.04.1995

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

2922132

[Date of registration]

30.04.1999

[Number of appeal against examiner's decision of

rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

8/02

(51) Int.Cl.6

H01M

## (12) 特 許 公 報(B2)

FΙ

H01M

8/02

(11)特許番号

## 第2922132号

(45)発行日 平成11年(1999) 7月19日

識別記号

(24) 登録日 平成11年(1999) 4月30日

В

S

8/10		8/10	
			請求項の数6(全 13 頁)
(21) 出願番号	特顏平7-56146	(73)特許権者	000003078 株式会社東芝
(22)出顧日	平成7年(1995)3月15日	(72)発明者	神奈川県川崎市幸区堀川町72番地 霜鳥 宗一郎
(65)公開番号	特別平8-250130 平成8年(1996)9月27日		神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝研究開発センター内
(43)公開日 審査請求日	平成7年(1995)4月19日	(72)発明者	椋 儀晴 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝研究開発センター内
		(72)発明者	宗内
		(74)代理人	弁理士 鈴江 武彦
		審査官	榊原 貴子
			最終頁に続く

#### (54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池

## (57)【特許請求の範囲】

【請求項1】高分子電解質膜と、この高分子電解質膜の一方の面に接触して設けられた多孔質の燃料極と、前記高分子電解質膜の他方の面に接触して設けられた多孔質の酸化剤極と、導電性の多孔質体で形成されて前記燃料極に接触して設けられるとともに上記燃料極との接触面に燃料ガスを通流させるための複数の案内溝を有した燃料極側集電体と、導電性部材で形成されて前記酸化剤に接触して設けられるとともに上記酸化剤極との接触面に酸化剤ガスを通流させるための複数の案内溝を有した酸化剤ガスを通流させるための複数の案内溝を有した酸化剤極側集電体の前記各案内溝に反応性ガスを分配供給するための内部マニホールド機構とを備えた単位セルを複数積層するとともに、各単位セル毎に冷却板を挿入し、この冷却板内を通流する冷却水の一部を多孔質体で形成

2

された加湿水透過体,前記燃料極側集電体および前記燃料極を介して前記高分子電解質膜に供給するようにした 固体高分子型燃料電池において、

前記燃料極側集電体が親水性の導電性多孔質体で形成され、前記加湿水透過体が撥水性の導電性多孔質体で形成 されていることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【請求項2】前記加湿水透過体は、親水性で導電性多孔 質体に撥水性の樹脂を含浸したもので形成されていることを特徴とする請求項1に記載の固体高分子型燃料電 池。

【請求項3】前記加湿水透過体は、直径1mm以下の微細孔が複数設けられた導電性の緻密な薄板に、撥水処理を施したもので形成されていることを特徴とする請求項 1に記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項4】高分子電解質膜の両側に、この高分子電解

質膜よりも面積が小さい燃料極および酸化剤極からなる ガス拡散電極を配置するとともに上記ガス拡散電極の外 周部分にパッキングを設け、このパッキングでガスシー ルを行わせるようにした固体高分子型燃料電池におい て、

前記パッキングは、前記ガス拡散電極より薄い弾力性を 有したシートで形成されるとともに上記ガス拡散電極を 越える高さの凸型のシール用リップが一体に設けられて いることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

一、【請求項5】前記パッキングには、燃料ガス、酸化剤ガ 10 ス、冷却水の供給および排出に供される孔が設けられて おり、これらの孔の周囲にも凸型のシール用リップが設 けられていることを特徴とする請求項4に記載の固体高 分子型燃料電池。

【請求項6】前記パッキングには、該パッキングの内縁部および外縁部に、各縁部に沿ってそれぞれ一周する凸型の内側シール用リップおよび外側シール用リップが設けてあり、電池組立後に上記内側および外側シール用リップ間に形成された空間に不活性ガスを注入可能に形成されていることを特徴とする請求項4または5に記載の20固体高分子型燃料電池。

### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【産業上の利用分野】本発明は、水素イオン伝導性を有する高分子膜や水素イオン伝導性を有する無機または有機材料粉末と高分子結着材料とからなる複合材を電解質として用いる固体高分子型燃料電池に関する。

[0002]

【従来の技術】近年、高効率のエネルギ変換装置として 燃料電池が注目を集めている。燃料電池は、これに用い 30 る電解質の種類により、たとえばアルカリ性水溶液型、 リン酸型、固体高分子型等の低温動作燃料電池と、溶融 炭酸塩型、固体酸化物電解質型等の高温動作燃料電池と に大別される。

【0003】これらの燃料電池のうち、電解質として水素イオン伝導性を有する高分子電解質膜(Polymer Electrolyte Membrane)を用いる固体高分子型燃料電池は、加圧容器を必要とせず、コンパクトで高出力密度が得られること、優れた起動性が得られ、かつ簡略なシステムで運転が可能であることなどの理由から、宇宙用、移動 40電源用、離島用、定置用などとして注目されている。

【0004】固体高分子型燃料電池で用いられる電解質膜としては、スルホン酸基を持つポリスチレン系の陽イオン交換膜、フルオロカーボンスルホン酸とポリビニリデンフルオライドとの混合物質、フルオロカーボンマトリックスにトリフルオロエチレンをグラフト化したもの等が知られている。最近ではパーフルオロカーボンスルホン酸膜(たとえば、ナフィオン:商品名、デュポン社製)等も用いられている。

【0005】このような高分子電解質膜を用いる固体高 50

分子型燃料電池は、ガス拡散層および触媒層としての機能を有する一対の多孔質電極、つまり燃料極と酸化剤極とで高分子電解質膜を挟持するとともに両極の外側に燃料流路と酸化剤流路とを備えた集電体を配したものを単セルとし、このような単セルを複数個、冷却板等を介して積層した構成となっている。

【0006】すなわち、図19に代表的な固体高分子型燃料電池の例を示すように、高分子膜1を挟むように燃料極2と酸化剤極3(図示せず)とを配置し、燃料極1側に燃料ガス流路としての機能を備えた多孔質の燃料極側集電板4を配置し、酸化剤極2側に同じく酸化剤ガス流路としての機能を備えた溝付きの酸化剤極側集電板5を配置する。そして、燃料極側集電板4の上に加湿水を保持するための多孔質板(冷却板)6を配置し、燃料極2の周辺にシールのためのパッキング7を配置し、同様に酸化剤極3の周辺にシールのためのパッキング8を配置する。

【0007】このように各要素を配置したものを単セルとし、この単セルを複数個積層して固体高分子型燃料電池が構成されている。なお、積層体中には各単セルを隔離するためのセパレータ9が挿設されている。また、この図の例では、燃料極側集電板4に設けられた燃料ガス流路と酸化剤極側集電板5に溝によって形成された酸化剤ガス流路とが互いに直交しており、積層体の対向する2側面に酸化剤流路が開口している。また、パッキング7には燃料の供給と排出とを行うためのマニホールド部10、11 (ただし、マニホールド部11は図示せず。)が設けられている。

【0008】積層体の両端面にはエンドプレート12が 重ねて設けられる。そして、これらエンドプレート12 の外側にエンドプレート12より大きい図示しない締付 け板を配置し、これら締付け板間を締付けロッドとバネ とを用いて締付け、これによって積層された各単セル部 品間の面接触を保ち、電気的、熱的な抵抗を小さくして いる。なお、酸化剤ガスとしては純酸素や空気が用いられ、燃料ガスとしては純水素や天然ガスやメタノールを 改質した水素リッチなガスが用いられる。

【0009】しかしながら、上記のように構成された従来の固体高分子型燃料電池にあっては次のような問題があった。

(1) 電気的定数のほぼ等しいスタックを組立てることが 困難

図19から判るように、固体高分子型燃料電池を構成するには多くの部品を必要する。このように部品数が多いと、複数の単セルを積層組立するときの作業が極めて困難となるばかりか、各部品間の接触抵抗がある値以下となるように各部を組立てることが困難となり、電気的定数のほぼ等しいスタックを複数用意することが困難で、システム全体の性能低下を招く問題があった。

【0010】(2) 望まれる加湿系統の構築が困難

5

電解質として用いられる高分子膜は、水分を含んだ状態で水素イオン伝導性を示す。乾燥すれば絶縁体となり、 電解質の機能を果たさない。そして、飽和状態まで吸湿 したとき、最も高い伝導性を示す。起電反応を継続させ るには、高分子電解質膜の乾燥を防ぎ、含水状態に保 つ、つまり加湿する必要がある。

【0011】高分子電解質膜を加湿する方法としては、 電池温度より高温に加熱した燃料ガスや酸化剤ガスに水 蒸気を加え電池内で凝集させて加湿する、いわゆる間接 加湿方式と、冷却水の一部を多孔質板(冷却板)および 10 多孔質の燃料極側集電板を通して燃料極内に滲み出させ て直接加湿する直接加湿方式とがある。

【0012】しかし、間接加湿方式では、燃料ガスや酸化剤ガスを電池の動作温度よりも高温に加熱する必要があるので、効率の低下を免れ得ない。一方、直接加湿方式では、システムの停止時などにおいて、冷却水の一部が燃料極内に洩れ出したり、逆に燃料ガスが冷却水中に入り込むなど、システムの保全性に問題があった。また、定電流密度で定常発電しているときには、電池反応による生成水が酸化剤極から高分子電解質膜に拡散し、高分子電解質膜が充分加湿される。したがって、このような場合には加湿水が不要になり、その結果として余剰の加湿水で燃料極が閉塞して性能が低下する問題もあった。

【0013】また、単セルの積層数が多くなった場合、 重力の作用によって、垂直方向の下部に位置する単セル ほど透過水量が多くなり、上部を適度な加湿状況にしよ うとすると下部の燃料ガス流路が余剰の水で閉塞され、 逆に下部を適度な加湿状況にしようとすると上部では加 湿不足が発生するなどの問題もあった。

【0014】(3) 燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水の シールが困難

図19に示されるように、燃料極2および酸化剤極3の 周囲に平らなパッキング7、8を配置し、これらパッキ ング7、8で燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水のシー ルを行っているが、平パッキングと電極との段差調整が 極めて難しい。すなわち、パッキング7,8が厚すぎる と、燃料極2や酸化剤極3が燃料極側集電板4や酸化剤 極側集電板5と良好に接触せず、接触抵抗が大きくなっ て、電池性能が低下してしまう。また、電極が厚すぎる 40 と、パッキング7,8に充分なシール面圧を加えること ができず、これが原因して供給ガスおよび冷却水のリー クをもたらす。また、固体高分子型燃料電池では、図1 9に示されるように、セパレータ9、パッキング7,8 等に供給ガスおよび冷却水の供給/排出用の孔を設ける 内部マニホールド構成を採用するのが一般的である。こ の場合には、パッキング7、8の面積が大きくなり、こ の結果、スタックの断面積が大きくなって大きい締付け 力が必要となり、スタッド、金属バネなどからなる締付 け治具が大掛かりになってしまうという問題があった。

[0015]

【発明が解決しようとする課題】上述の如く、従来の固体高分子型燃料電池にあっては、構造的に電池性能を向上させることが困難であった。そこで本発明は、組立てが容易で、しかも性能を大幅に向上させ得る固体高分子型燃料電池を提供することを目的としている。

6

[0016]

[0017]

[0018]

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため <u>に</u>、本発明の第<u>1</u>の発明では、高分子電解質膜と、この 高分子電解質膜の一方の面に接触して設けられた多孔質 の燃料極と、前記高分子電解質膜の他方の面に接触して 設けられた多孔質の酸化剤極と、導電性の多孔質体で形 成されて前記燃料極に接触して設けられるとともに上記 燃料極との接触面に燃料ガスを通流させるための複数の 案内溝を有した燃料極側集電体と、導電性部材で形成さ れて前記酸化剤に接触して設けられるとともに上記酸化 剤極との接触面に酸化剤ガスを通流させるための複数の 案内溝を有した酸化剤極側集電体と、前記燃料極側集電 体および前記酸化剤極側集電体の前記各案内構に反応性 ガスを分配供給するための内部マニホールド機構とを備 えた単位セルを複数積層するとともに、各単位セル毎に 冷却板を挿入し、この冷却板内を通流する冷却水の一部 を多孔質体で形成された加湿水透過体,前記燃料極側集 電体および前記燃料極を介して前記高分子電解質膜に供 給するようにした固体高分子型燃料電池において、前記 燃料極側集電体が親水性の導電性多孔質体で形成され、 前記加湿水透過体が撥水性の導電性多孔質体で形成され ていることを特徴としている。

【0019】なお、前記加湿水透過体は、親水性で導電性多孔質体に撥水性の樹脂を含浸したもので形成されていてもよいし、直径1mm以下の微細孔が複数設けられた導電性の緻密な薄板に、撥水処理を施したもので形成されていてもよい。そして、単セルを複数積層してスタックを構成したとき、垂直方向の下部に位置する加湿水透過体ほど前記微細孔の配設密度の小さいものを組込むようにしてもよい。

【0020】上記目的を達成するために、本発明の第2の発明では、高分子電解質膜の両側に、この高分子電解質膜よりも面積の小さい燃料極および酸化剤極からなるガス拡散電極を配置するとともに上記ガス拡散電極の外間部分にパッキングを設け、このパッキングでガスシールを行わせるようにした固体高分子型燃料電池において、前記パッキングは、前記ガス拡散電極より薄い弾性を有したシートで形成されるとともに上記ガス拡散電極を越える高さの凸型のシール用リップが一体に設けられていることを特徴としている。

【0021】なお、前記パッキングに、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水の供給および排出に供される孔を設ける

場合には、これらの孔の周囲にも凸型のシール用リップを設けることが好ましい。また、前記パッキングの内縁部および外縁部に、これらの縁部に沿ってそれぞれ一周する凸型の内側シール用リップおよび外側シール用リップを設け、電池組立後に上記内側および外側シール用リップ間に形成された空間に不活性ガスを注入可能に形成してもよい。

## [0022]

[0023]

【作用】第1の発明では、燃料極側集電体を親水性の多 孔質体で形成し、加湿水透過体を撥水性の多孔質体で形成しているので、冷却水の圧力が燃料ガス流の圧力より 所定以上高いときに、圧力差と加湿水透過体の厚みと気 孔率と平均孔径と親水性とで決まる量の水を加湿水透過 体を介して燃料極側集電体、つまり高分子電解質膜に供 給することができる。したがって、圧力差の設定によっ て、必要なときにセル全体を加湿することができ、また 停止時や電池反応生成水で充分加湿されているときなど のように、加湿を必要としないときには水の供給を停止 することができるので、システムの保全性を向上させる ことができるので、システムの保全性を向上させる ことができるので、システムの保全性を向上させる ことができるので、余剰水によって燃料極が閉塞 されるようなことがなく、電池性能の向上に寄与できる。

【0024】第2の発明では、ガス拡散電極の外周部分にガス拡散電極より薄い弾性を有するシートで形成されたパッキングを配置するとともに、このパッキングにガス拡散電極を越える高さの凸型のシール用リップを一体に設けているので、ガス拡散電極とパッキングとの厚さの違いをシール用リップで吸収することができ、これに30よってガス拡散電極と集電体とを良好に接触させることができるので、電池性能の向上に寄与できる。また、パッキングでの受圧面積を減らすことができるので、スタックの締付け力を低減することもできる。

### [0025]

【実施例】以下、図面を参照しながら実施例を説明する。図1には本発明の第1の実施例に係る固体高分子型 燃料電池の分解斜視図が示されている。

【0026】この固体高分子型燃料電池は、単セル21を互いの間にセパレータ板22a,22bおよび導電性40 多孔質材で形成された加湿水透過板23を介在させて複 数積層した積層構造に形成されている。

【0027】単セル21は、公知のものと同様の材質で形成された高分子電解質膜24と、この高分子電解質膜24より小さい面積の導電性多孔質材で形成されて高分子電解質膜24の図中下面に接触配置された燃料極25と、同じく高分子電解質膜24より小さい面積の導電性多孔質材で形成されて高分子電解質膜24の図中上面に接触配置された酸化剤極26と、燃料極25とほぼ同じ厚みのシール材で形成されて燃料極25の外周部分に配50

置されたシール用のバッキング27と、酸化剤極26とほぼ同じ厚みのシール材で形成されて酸化剤極26の外周部分に配置されたシール用のバッキング28と、酸化剤極26への酸化剤ガス供給機能と加湿水透過板23への給水機能と集電機能とを備えた両面型セパレータユニット29の一部と、燃料極25への燃料ガスの供給機能と集電機能とを備えた片面型セパレータユニット30の一部とで構成されている。

【0028】両面型セパレータユニット29は、図2お よび図4に示すように、前述した緻密なカーボン製のセ パレータ板22aと、このセパレータ板22aの両面に たとえばエポキシ系の接着剤で固定された緻密なカーボ ン製の集電体外枠31、32と、これら集電体外枠3 1、32内に配置されるとともにセパレータ板22aに 対してカーボンを含む導電性接着剤で固定された集電体 33,34と、これら集電体33,34と一体に形成さ れて集電体外枠31、32内に配置されるとともにセパ レータ板22aに対して上記導電性接着剤で一体に固定 された内部マニホールド要素35,36、37,38 と、集電体33,34を外部に臨ませる開口39,40 を有するとともに内部マニホールド要素35,36,3. 7, 38<u>に接触状態でこれらを</u>覆う領域41, 42を備 えて集電体外枠31、32にエポキシ系の接着剤で固定 されたカーボン製のマニホールドカバー43、44とで 構成されている。

【0029】集電体33、34の表面でマニホールドカバー43、44の開口39、40から外部を臨む部分には、図4にも示すように流体を案内するための案内溝45、46が複数平行に形成されている。そして、内部マニホールド要素35、36、37、38は、上述した案内溝45、46に通じる複数の溝47、48を持つ要素を主体に形成されている。

【0030】ここで、集電体33、34における案内溝45、46の形成されている面と該面の両側に隣接する内部マニホールド要素35、36、37、38との間には、マニホールドカバー43、44の厚み分に相当する段差が形成されており、この段差の存在によって図2に示すように、集電体33、34における案内溝45、46の形成されている面とマニホールドカバー43、44の表面とが面一となっている。

【0031】両面型セパレータユニット29の両側部、 片面型セパレータユニット30の両側部、高分子電解質 膜24の両側部、パッキング27、28の両側部には、 それぞれ図1および図4に示すように、燃料ガスを供給 /排出するための孔50、51と、冷却水を供給/排出 するための孔52、53と、酸化剤ガスを供給/排出す るための孔54、55とが積層方向に通じる関係に設け られている。

【0032】そして、両面型セパレータユニット29における内部マニホールド要素35、36は冷却水を供給

/排出するための孔52,53に通じ、また内部マニホールド要素37,38は酸化剤ガスを供給/排出するための孔54,55に通じている。

【0033】片面型セパレータユニット30は、図3に示すように、多孔質カーボン部60を有するセパレータ板22bと、このセパレータ板22bの片面にたとえばエポキシ系の接着剤で固定された多孔質カーボン製の集

- ・ 電体外枠61と、この集電体外枠61内に配置されると - ともにセパレータ板22bに対してカーボンを含む導電
- ・ 性接着剤で固定された集電体62と、この集電体62と 10 ー体に形成されて集電体外枠61内に配置されるととも にセパレータ板22bに対して上記導電性接着剤で一体 に固定された内部マニホールド要素63,64と、集電 体62を外部に臨ませる開口65を有するとともに内部 マニホールド要素63,64を覆う領域66を備えて集 電体外枠61にエポキシ系の接着剤で固定されたカーボ ン製のマニホールドカバー67とで構成されている。

【0034】すなわち、片面型セパレータユニット30は、セパレータ板22bの周辺部を除く部分および集電体62が多孔質のカーボンで形成されている点を除くと、前述した両面型セパレータユニット29におけるセパレータ板22aを境にした片側と同様に構成されている。ただし、この片面型セパレータユニット30における内部マニホールド要素63,64は、燃料ガスを供給/排出するための孔50,51に通じている。

【0035】このように構成された単セル21が加湿水透過板23を介して複数積層されて燃料電池積層体70が構成されている。そして、この燃料電池積層体70の積層方向に位置する両端面に導電性のエンドプレート71、72が当てがわれ、さらにこれらエンドプレート7301、72の外面にエンドプレートより幅広な図示しない締付け板が当てがわれ、これら締付け板の周縁部においてバネを介在させた条件下で両締付け板を絶縁性のロッドで積層方向に締付けたものとなっている。

【0036】なお、エンドプレート71の上面には、前述した孔50,51を介して燃料ガスの供給/排出を行うための燃料供給管73,燃料排出管74と、前述した孔52、53を介して冷却水の供給/排出を行うための冷却水供給管75、冷却水排出管76と、前述した孔54,55を介して酸化剤ガスの供給/排出を行うための40酸化剤ガス供給管77,酸化剤ガス排出管78とが対応する孔に通じる関係に設けられている。

【0037】このような構成であると、燃料供給管73を介して供給された燃料ガスは、各単セル21において 片面型セパレータユニット30における内部マニホール ド要素63を介して集電体62の各溝に流れる。そして、一部が燃料極25に拡散して発電に供され、残りが 内部マニホールド要素64を介して孔51へと流れた後 に燃料排出管74へと流れる。また、酸化剤供給管77 を介して供給された酸化剤ガスは、各単セル21におい50

て両面型セパレータユニット29における内部マニホールド要素37を介して集電体34の各構46に流れる。そして、一部が酸化剤極26に拡散して発電に供され、残りが内部マニホールド要素38を介して孔55へと流れた後に酸化剤排出管78へと流れる。一方、冷却水供給管75を介して供給された冷却水は、各単セル21において両面型セパレータユニット29における内部に流れる。そして、一部が加湿水透過板23、片面型セパレータホールド要素35を介して集電体33の各構45に流れる。そして、一部が加湿水透過板23、片面型セパレータ板22bの多孔質カーボン部60、集電体62、燃料極25をそれぞれ透過して高分子電解質膜24の加湿に供され、残りが内部マニホールド要素36を介して孔53へと流れた後に冷却水排出管76へと流れる。

10

【0038】このように、燃料ガス、酸化剤ガスおよび 冷却水の供給によって電池としての機能が発揮される。そして、この場合には、接着剤によって一体化された前 記構成の両面型セパレータユニット29および片面型セパレータユニット30を組込むようにしているので、これらユニットの接触抵抗や厚みを組立て前の段階で精度 よく管理することができる。この結果、電気的定数のほぼ等しいスタックを複数組立てることが容易となるので、システム全体の性能向上を図ることができる。

【0039】これらのセパレータユニットを使ってセルを組立て、接触抵抗による電圧ドロップを測定したところ、0.4A/cm²の電流密度で30mVであった。比較のために、従来構成のように各部品を順次積層して組立てられたセルの電圧ドロップを測定したところ同じ電流密度で70mVであった。このように、セパレータユニットを使用することで、電池性能を向上できることが確認された。

【0040】また、セパレータユニットを組込む構成を採用すると、組立時において部品数を実質的に減らすことができるので、組立ての容易化も図ることができる。なお、上述した実施例では、集電体とマニホールド要素とが一体に形成されたものを用いているが、図5に示すように、集電体80とマニホールド要素81,82とが別体に形成されたものをセパレータユニットに組込むようにしてもよい。また、上述した実施例では燃料極側の集電体に形成された構を流れる燃料ガスの通流方向と酸化剤極側の集電体に形成された構を流れる酸化剤ガスの通流方向とを平行流にしているが、向流にしてもよいし、直交流にしてもよい。

【0041】さらに、機械的強度を確保できる場合には、図6に示すように、マニホールド要素を省略し、集電体83の両側にマニホールドとして機能する半円状、三角形状等の空洞84を設けた片面型セパレータユニット85を用いてもよい。勿論、両面型セパレータユニットを構成することもできる。

【0042】この図6に示す例では、セパレータ板と集 電体外枠とを一体化した形状のカーボン製のセパレータ 要素85を用いている。また、マニホールドカバー86として、中央部に集電体83を臨ませる開口87を有するとともに、これをセパレータ要素85に接着固定したとき、丁度その表面と集電体83の構付き表面とが面ーとなる厚みのものを用いている。なお、図6中、88,89は燃料ガスを通流させるための孔を示し、90,91は酸化剤ガスを通流させるための孔を示し、冷却水を案内するための孔は省略されている。

【0043】次に、図7を参照しながら本発明の第2の 実施例に係る固体高分子型燃料電池について説明する。 先に説明したように、固体高分子型燃料電池を良好に動 作させるには、電解質層を構成している高分子電解質膜 を過不足なく一様に加湿する必要がある。同時に、シス テムの停止時や電池反応生成水により高分子電解質膜が 充分加湿されているときには、加湿水の供給を停止でき ることが望まれる。

【0044】このような要望を簡単な構成で実現できるようにしたのが本実施例であり、図7には単セルだけが示されている。同図において、100は公知のものと同様の材質で形成された高分子電解質膜を示している。こ 20の高分子電解質膜100の両面には高分子電解質膜より小さい面積の導電性多孔質材で形成された燃料極101と酸化剤極102とが接触配置されている。燃料極101および酸化剤極102の外周部分には各電極とほぼ同じ厚みのシール材で形成されたガスシール用のパッキング103,104が配置されている。

【0045】燃料極101の図中下面側には、燃料極101への燃料ガスの供給機能と集電機能とを発揮する燃料極側集電板105が接触配置されている。この燃料極側集電板105における燃料極101との接触面には、燃料ガスを通流させるための案内溝106が複数形成されている。同様に、酸化剤極102の図中上面側には、酸化剤極102への酸化剤ガスの供給機能と集電機能とを発揮する酸化剤極側集電板107が接触配置されている。この酸化剤極側集電板107における酸化剤極102との接触面にも、酸化剤ガスを通流させるための案内構108が複数形成されている。

【0046】燃料極側集電板105は、気孔率70% 平均 孔径  $40~\mu$  mの親水性のカーボン多孔質板に案内溝106を設けたもので形成されている。また、酸化剤極側集 40電板107は、カーボン板に案内溝108を設けたもの で形成されている。

【0047】一方、燃料極側集電板105の図中下面には加湿水透過板109が接触配置されており、この加湿水透過板109の図中下面には冷却板110が接触配置されている。

【0048】加湿水透過板109は、気孔率40%、平均 孔径5 μmの親水性のカーボンの多孔質薄板に撥水処理 を施したもので形成されている。すなわち、親水性のカ ーボンの多孔質薄板をフルオロカーボンの微粒子を含む 50

縣濁液に浸漬した後に300 ℃以上の温度で焼成し、これによって細孔の表面をフルオロカーボンで被覆して撥水性としている。この際に、加湿水透過板109の表面に水滴を落とし、接触角が90°以上であることを確認した後に、導電性をもたせるために両面を研磨したものとなっている。

【0049】冷却板110は、カーボン板に冷却水流路

12

を構成する案内溝111を複数設けたもので形成されており、案内溝111の設けられている面を加湿水透過板109の図中下面に貼り合わせたものとなっている。【0050】このように構成された単セルが複数積層されて燃料電池スタックが構成される。なお、燃料極側集電板105に設けられた案内溝106、酸化剤極側集電板107に設けられた案内溝108および冷却板110に設けられた案内溝11は、公知の固体高分子型燃料電池と同様の内部マニホールド機構を介して燃料ガス供給系統、酸化剤ガス供給系統および冷却水供給系統に接続される。

【0051】このように、燃料極側集電板105が親水性の導電性多孔質材で形成され、この燃料極側集電板105に接して設けられる加湿水透過板109が撥水処理された導電性多孔質材で形成されている。したがって、加湿水透過板109および燃料極側集電板105を透過して燃料極101、つまり高分子電解質膜100へ移行する加湿水の量は、溝111を流れる冷却水の圧力と構106を流れる燃料ガスの圧力との差圧に大きく左右される。したがって、差圧をコントロールすることによって加湿水量を自由に調整することが可能となる。

【0052】すなわち、図7に示す本実施例の単セルと親水性の加湿水透過板を用いた従来の単セルとを用意し、常圧の燃料ガスおよび冷却水を構106、111に満たして数日間放置してみたところ、従来の単セルでは冷却水の一部が漏れて燃料流路である溝106を閉塞していたのに対し、本実施例の単セルでは冷却水がほとんど漏れていないことが確認された。

【0053】また、加圧した燃料ガスおよび冷却水を供

給し、冷却水の圧力を変化させたときの水透過量すなわち加湿量の変化を調べたところ、図8に示す結果を得た。なお、図8において、Aが本実施例の単セルのデータを示し、Bが従来の単セルのデータを示している。【0054】親水性の加湿水透過板を用いた従来の単セルの場合には、毛細管現象により水を供給するため、冷却水と燃料ガスとが同じ圧力のときにおいても冷却、かの一部が高分子電解質膜100へ供給される。これにより、冷却水と燃料ガスとの差圧が所定の値(10kPa)より小さいときには、冷却水の一部は高分子電解質膜100へ供給されない。そして、差圧が所定の値を越えると冷却水の一部が高分子電解質膜100へ供給され、その供給量は差圧を増加させるにしたがって増大する。本実施例

の単セルでは、差圧が10kPa のレベルで高分子電解質膜 100を十分に加湿することができた。

【0055】このように、撥水性の加湿水透過板109を用いているので、冷却水の圧力と燃料ガスの圧力とが等しいとき、あるいは冷却水の圧力が低いときには加湿水の供給を停止することができ、また必要なときに所定の値より大きな圧力差を設定することによって、高分子

- \* 電解質膜100を良好に加湿することができる。なお、 加湿水が過不足なく供給されているか否かの判定は、燃
- \* 料ガスの供給圧力の変化等で簡単に知ることができる。 したがって、余剰の加湿水で燃料ガス流路が閉塞されて 電池性能が低下するのを防止することが可能となる。

【0056】なお、図7に示される単位セルを10枚積層して積層電池を構成し、燃料流より100kPa高い圧力で冷却水を供給したときの各セルの燃料流および冷却水の圧力分布を調べたところ、図9に示す結果を得た。また、そのときの各セルの加湿量の分布を調べたところ、図10に示す結果を得た。これらの図には、毛細管現象による加湿方法を採用した従来の単セルを組込んだ積層電池の特性も合せて示されている。

【0057】積層電池では、分岐損失、合流損失などの 圧力損失により、冷却水、燃料ガスともに各単セルで異 なる圧力となる。従来の加湿方法では、燃料ガスの圧力 と冷却水の圧力が同じセルでは適当な量の加湿水を供給 することができるが、冷却水の圧力と燃料ガスの圧力が 違うセル、特に冷却水の圧力が高いセルでは、水が過剰 に供給され、各セル間において加湿量に著しい差が生じ る。これに対して、本実施例の単セルを組込んだ積層電 池では、差圧をつけて加湿水を供給しているため、各セ ルでの圧力差のばらつきを小さくでき、加湿量のばらつ 30 きも小さくできる。

【0058】さらに、冷却水と燃料ガスとの圧力差が大きいセルに、気孔率または平均孔径の小さい加湿水透過板(撥水処理されている。)を組込んで実験してみた。この実験では、圧力差が最も小さいNo.1のセルに気孔率40%の加湿水透過板を組込み、以下セル番号が1つ増えるにしたって1%ずつ気孔率が小さくなる加湿水透過板をそれぞれ組込んだ。そして、燃料ガス流より100kPa高い圧力で冷却水を供給したときの各セルの加湿量の分布を調べたところ、図10に示す結果を得た。この結40果から判るように、圧力差に対応させて加湿水透過板の気孔率を選択することにより、各単位セルにおける圧力差から生じる加湿量の差をより小さくでき、各単位セルを一様に充分に加湿することができる。

【0059】なお、冷却水と燃料ガス流との間に差圧を生じ易くするためには、加湿水透過板109には燃料極側集電板105よりも気孔率または平均孔径の小さいものを用いる方がよい。

【0060】また、気孔率45%以上、平均孔径 10 μm 以上の多孔質体では、厚さ1mm で10kPa 以上の差圧を設 50 けることが困難であるため、それよりも小さな気孔率お よび平均孔径が望ましい。

14

【0061】このような気孔率および平均孔径は、加湿水透過板を構成する導電性多孔質材の材料の選択によっても得られるが、撥水処理によっても実現できる。たとえば、撥水性の加湿水透過板の基材として、気孔率70%、平均孔径40μmの親水性のカーボン多孔質薄板を用いた場合の例を説明する。

【0062】まず、上記カーボン多孔質薄板に細孔容量に対する含浸容量の割合Wが43%,50%,57%、つまり含浸後の気孔率が49%,35%,30%となるようにフルオロカーボンを含浸する。表面に水滴を落とし、接触角が90°以上であることを確認した後に導電性をもたせるために両面を研磨する。

【0063】このようにして製作された3枚の撥水性の加湿水透過板に100kPaの差圧をかけたときの加湿量Fを図11に示す。含浸の割合が大きくなると加湿量が少なくなる。そこで、Wを変化させ、気孔率が1%刻みで30~40%である加湿水透過板を合計10枚製作し、積層電池に用いたところ、図8にAで示した結果と同様に各セルを一様に加湿することができた。

【0064】このように、適当な量のフルオロカーボンを含浸することで、撥水性の加湿水透過板を製作することが可能になり、さらにその含浸量を変化させることにより、所定の圧力差での加湿量を調整することができる。含浸量により、気孔率および平均孔径が調整できるので、気孔率70%以上または平均孔径40μm以上の導電性多孔質体を用いることができるが、含浸後の気孔率は45%未満、平均孔径10μm未満であることが望ましい。

【0065】また、上述した各例では、導電性多孔質材に撥水処理を施して形成された加湿水透過板を用いているが、図12に示すようにカーボンの緻密な薄板に直径1mm以下の微細孔112を多数設けたものに撥水処理を施して形成された加湿水透過板109aを用いることもできる。

【0066】たとえば、カーボンの緻密な薄板に60、90、120 $\mu$ mの微細孔 112をレーザ加工で設けた。その後、前記例と同様な撥水処理を施した。このようにして製作された3枚の撥水性の加湿水透過板に100kPaの差圧をかけたときの微細孔1個あたりの加湿量を調べたところ、図13に示す結果を得た。この図から判るように、孔径が小さくなるにしたがって加湿量が少なくなっている。

【0067】このように、導電性の緻密な薄板に微細孔を設けたものに撥水処理を施して形成された加湿水透過板109aを用い、単セル毎に微細孔径を変化させることにより、所定の圧力差での加湿量を調整することができる。さらに、単セル毎あるいは単セル数個毎に単位面積当たりの微細孔の数を変化させることにより、所定の圧力差での加湿量を精密に制御することができる。

【0068】単位面積当たりの微細孔の数を変化さた例を図14を用いて説明する。この例では各単セルに組込まれた撥水性の加湿水透過板が重力方向と直交するように複数の単セルを積層して燃料電池積層体113を構成している。そして、燃料電池積層体113を重力方向に3つの領域114,115,116に区分し、各領域毎に加湿水透過板の微細孔の数を変化させている。すなわち、90μmの微細孔を領域114では1cm²あたり3

【0069】このように、重力方向の上部では微細孔の数を多くし、下部では微細孔の数を少なくしておくと、下部に位置している各単セルが重力の影響で加湿水過多になるのを防ぐことができ、各領域に亙って一様に加湿することができる。

【0070】次に、図15を参照しながら本発明の第3の実施例に係る固体高分子型燃料電池を説明する。先に説明したように、固体高分子型燃料電池では、燃料極および酸化剤極の周囲にパッキングを配置し、これらのパッキングで燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水のシールを行っている。しかし、これらのパッキングの厚さと電極の厚さとに差があると、燃料極や酸化剤極と集電体との間の接触抵抗の増加を招いたり、シール不良を招いたりする。また、燃料ガス、酸化剤ガスおよび冷却水の供給/排出用の孔をパッキングに設ける構成を採用したものでは、パッキングの面積が大きくなり、この結果、スタックの形成に大きな締付け力を必要とする。

【0071】このような問題を簡単な構成で解消できるようにしたのが本実施例であり、図15には単セルの要部だけが示されている。同図において、120は公知の30ものと同様の材質で形成された高分子電解質膜を示している。この高分子電解質膜120の両面には高分子電解質膜より小さい面積の導電性多孔質材で形成された厚さ $400~\mu$  mの燃料極121と酸化剤極122とが接触配置されている。

【0072】燃料極121および酸化剤極122の外周部分には、厚さ $200~\mu$  mの弾性シート、たとえばゴムシートで形成されたガスシール用のパッキング123, 124が配置されている。

【0073】パッキング123, 124には、図16に 40 パッキング124だけを代表して示すように、高分子電解質膜120に接触する面とは反対側に位置する面で酸化剤極122を取り囲むように高さ $300~\mu$  m、幅1mmの凸型のシール用無端リップ125が一体に突設されている。また、パッキング123, 124には、燃料ガスの供給/排出に供される孔126, 127、酸化剤ガスの供給/排出に供される孔128, 129および冷却水の供給/排出に供される孔130, 131が設けてあり、これらの孔の回りにも高さ $300~\mu$  m、幅1mm の凸型のシール用無端リップ132~50

~137が一体に突設されている。

【0074】燃料極121の図中下面側には、燃料極121への燃料ガスの供給機能と集電機能とを発揮する親水性のカーボン多孔質板で形成された燃料極側集電板138が接触配置されている。この燃料極側集電板138における燃料極121との接触面には、燃料ガスを通流させるための案内溝139が複数形成されている。

16

【0075】同様に、酸化剤極122の図中上面側には、酸化剤極122への酸化剤ガスの供給機能と集電機能とを発揮するカーボン板で形成された酸化剤極側集電板140が接触配置されている。この酸化剤極側集電板140における酸化剤極122との接触面にも、酸化剤ガスを通流させるための案内溝141が複数形成されている。

【0076】このように構成された単セルの主要部が、 燃料極側集電板138側に図示しない加湿水透過板およ び冷却水配流板を配置した状態で複数積層され、この積 層体が図示しない締付け手段で積層方向に締付けられて 燃料電池スタックが構成される。

【0077】なお、燃料極側集電板138および酸化剤極側集電板140には、前述した燃料ガスの供給/排出に供される孔126、127、酸化剤ガスの供給/排出に供される孔128、129および冷却水の供給/排出に供される孔130、131に通じる孔がそれぞれ設けられている。

【0078】このように、燃料極121および酸化剤極122の外周部分に、これら電極より薄い弾力性を有したパッキング123,124を配置するとともに、これらパッキイング123,124の各電極を取り囲む部分および各流体を通流させるために設けられた孔の回りに各電極を越える高さの凸型のシール用無端リップ125,132~137を一体に設けている。

【0079】したがって、燃料極121や酸化剤極122とパッキング123,124との厚さの違いをシール用無端リップ125,132~137で吸収することができ、これによって燃料極121と燃料極側集電板138および酸化剤極122と酸化剤極側集電板140とを良好に接触させることができるので、電池性能の向上に寄与できる。また、スタックを形成するときの締付け力は、シール用無端リップ125,132~137だけに加わる。このため、パッキング123,124での受圧面積を減らすことができ、スタックの締付け力を低減した状態で良好なシールを実現できることになる。

【0080】上述した効果を確認するために、本実施例の単セルと厚さ $500~\mu$  m、幅20mmのゴム製の平パッキングを用いた従来の単セルとを用意し、金属バネにより締め付けた。そして、0.3~MPa, 0.2~MPa にそれぞれ加圧した燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給して1時間放置した。この試験を、締付け力を変化させて行い、放置後の燃料ガスおよび酸化剤ガスの圧力が変化しない締付け力

を調べた。その結果、本実施例の単セルでは締付け力が2800~2900 (kgf)であった。これに対して、従来の単セルでは締付け力が7300~8200 (kgf)であった。

【0081】このように、本実施例の単セルでは、シール部の受圧面積を低減できるため、シールに必要な締付け力を従来の単位セルに比べて38%まで低減できることが判った。

\*【0082】次に、上記の締付け力のもとで、本実施例 ~の単セルと従来の単位セルとについて、燃料極121と

燃料極側集電板 1 3 8 との間の接触抵抗を測定した。そ 10 の結果、本実施例の単セルでは接触抵抗が0.11~0.12(Ω cm²) であった。これに対して、従来の単セルでは接触抵抗が0.25~0.33(Ω cm²) であった。

【0083】このように、本実施例の単セルでは、電極とパッキングとの厚さの違いをシール用無端リップ125、132~137で容易に吸収することができるので、従来の単セルに比べて接触抵抗を小さくすることができる。

【0084】上記例から判るように、パッキング123、124のシートの厚さは、燃料極121および酸化20 剤極122の厚さより薄い方がよく、さらにパッキング123、124のシートの厚さとシール用無端リップの厚さの合計は、燃料極121および酸化剤極122の厚さより大きい方がよい。

【0085】また、上記実施例では、パッキング123、124の片面にシール用無端リップを設けているが、両面にシール用無端リップを設けてもよい。この場合も、パッキングのシートの厚さは、燃料極121および酸化剤極122の厚さより薄い方がよい。さらに、パッキングのシートの厚さと両面のリップの厚さとの合計30は、燃料極121および酸化剤極122の厚さより大きい方がよい。

【0086】また、上述した実施例では、パッキング123、124の各電極を取り囲む部分および各流体を通流させるために設けられた孔の回りに各電極を越える高さの凸型のシール用無端リップ125、132~137を一体に設けているが、この構成に加えて、図18に示すように、パッキング123a(124b)の周縁部に、この周縁部を一周する少なくとも1つの凸型のシール用無端リップ142を設けるとともに、シール用無端40リップ125、142間に存在する空間143を外部に通じさせる孔144を設け、組立て後に孔144を通して空間143に加圧した窒素などの不活性ガスを注入できるようにしてもよい。

【0087】このように構成すると、燃料ガスの供給/排出に供される孔126,127、酸化剤ガスの供給/排出に供される孔128,129および冷却水の供給/排出に供される孔130,131の回りに設けられたシール用無端リップ132~137の外側となる部分を加圧することができるので、これらシール用無端リップ150

32~137の内外面の圧力差を低減でき、加圧した供 給ガスおよび冷却水が互いに混じり合うのをより確実に 防ぐことができる。

18

[0088]

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、 簡単な構成であるにも拘らず、電池性能の向上に寄与で きる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施例に係る固体高分子型燃料 電池の分解斜視図

【図2】同電池に組込まれた両面型セパレータユニットの縦断面図

【図3】同電池に組込まれた片面型セパレータユニットの縦断面図

【図4】同電池に組込まれた両面型セパレータユニット の分解斜視図

【図5】同セパレータユニットに組込まれる集電体およびマニホールド要素の変形例を示す斜視図

【図6】セパレータユニットの変形例を示す分解斜視図

【図7】本発明の第2の実施例に係る固体高分子型燃料 電池における単セルの縦断面図

【図8】同単セルにおける加湿特性を従来の単セルの特性と比較して示す図

【図9】同単セルを組込んだ積層電池の特性を従来の積 層電池の特性と比較して示す図

【図10】同単セルを組込んだ積層電池の特性を従来の 積層電池の特性と比較して示す図

【図11】加湿水透過板の空孔率と加湿特性との関係を 示す図

【図12】加湿水透過板の変形例を説明するための縦断 面図

【図13】同加湿水透過板に設けられた微細孔の直径と 加湿量との関係を示す図

【図14】同加湿水透過板を組込んだ積層電池例を説明 するための図

【図15】本発明の第3の実施例に係る固体高分子型燃料電池における単セルの分解縦断面図

【図16】同単セルに組込まれたパッキングの平面図

【図17】同単セルを図15の紙面とは直交する線に沿って切断して示す分解縦断面図

【図18】パッキングの変形例を説明するための平面図

【図19】代表的な従来の固体高分子型燃料電池の分解 斜視図

【符号の説明】

21…単セル

22a, 22b…セパレータ板

23, 109, 109 a …加湿水透過板

24,100,120…高分子電解質膜

25, 101, 121…ガス拡散機能を備えた燃料極

26,102,122…ガス拡散機能を備えた酸化剤極

27, 28, 103, 104, 123, 124…パッキング

29…両面型セパレータユニット

30…片面型セパレータユニット

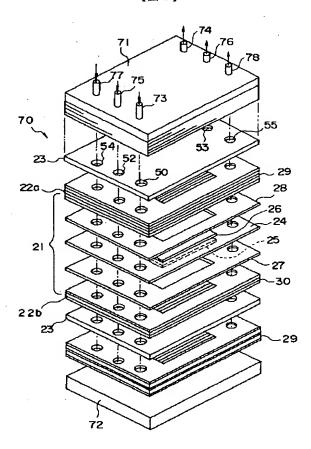
31,32,61…集電体外枠

33, 34, 62, 80, 83…集電体

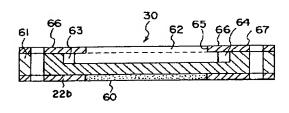
35, 36, 37, 38, 63, 64, 81, 82...マ

● ニホールド要素

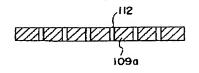
[図1]



[図3]



【図12】



\*39,40,65,87…開口

43, 44, 67, 86…マニホールドカバー

\_20

45, 46, 47, 48…案內溝

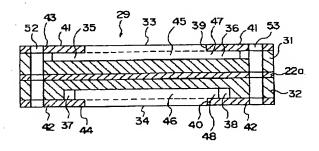
70…燃料電池積層体

50~55, 88~91, 126~131…内部マニホールドを構成する孔

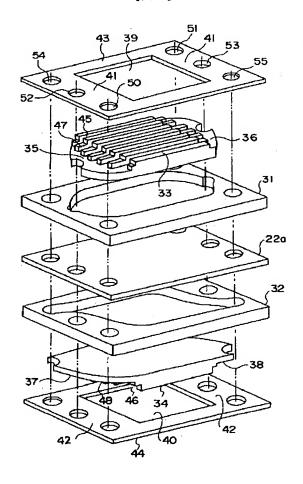
ールトを研放するれ 125,132~137,142…シール用無端リップ

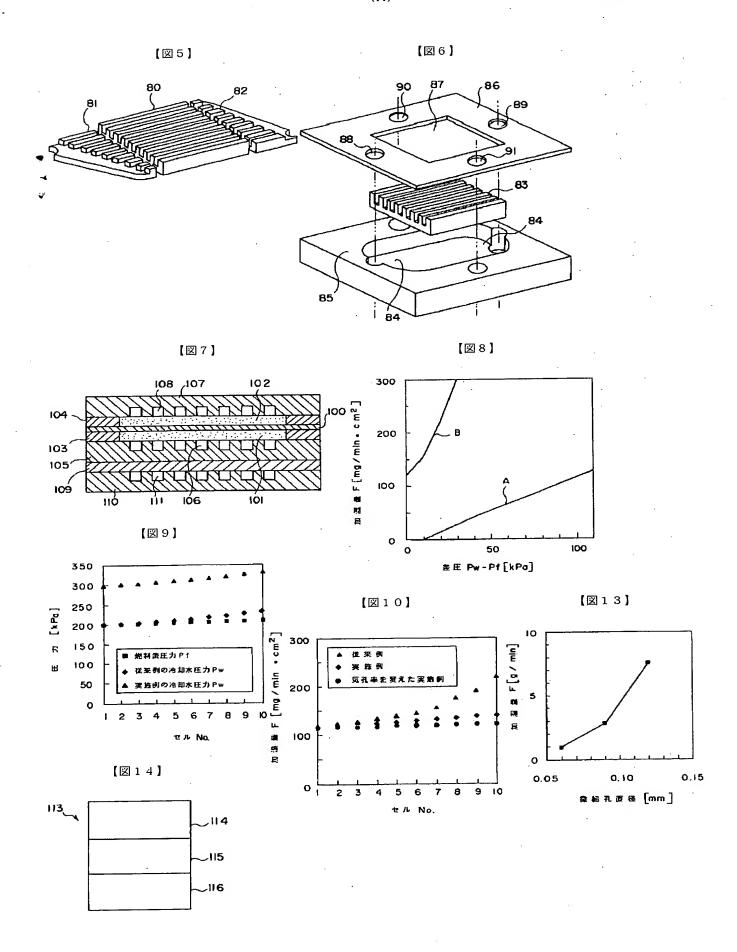
144…不活性ガス同入用の孔

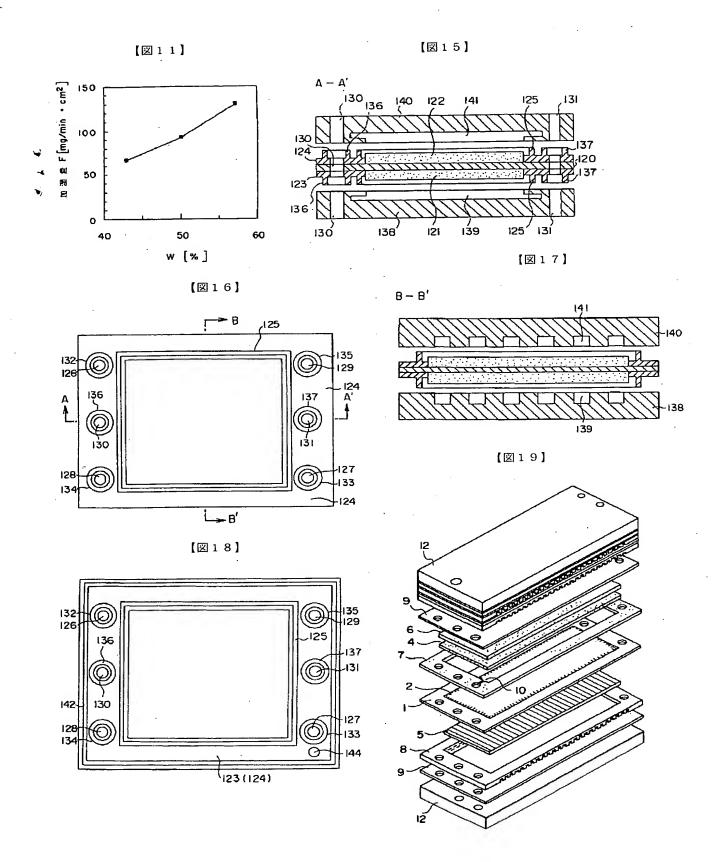
【図2】



【図4】







フロントページの続き

(72)発明者 村田 謙二

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地

株式会社東芝研究開発センター内

(56)参考文献 特開 平6-290795 (J.P. A)

特開 昭60-151972 (JP, A)

特開 平6-68884 (JP, A)

特開 昭61-42869 (JP, A)

特開 昭64-30172 (JP, A)

特開 昭59-224075 (JP, A)

実開 平5-66875 (JP, U)

(58)調査した分野(Int. Cl. <sup>6</sup>, DB名)

H01M 8/00 - 8/24

\*